

# СУМСЬКИЙ ДЕРЖАВНИЙ УНІВЕРСИТЕТ

Білоус Олена Анатоліївна

УДК 539.292

## ВНУТРІШНІЙ РОЗМІРНИЙ ЕФЕКТ В ЕЛЕКТРОФІЗИЧНИХ ВЛАСТИВОСТЯХ МЕТАЛЕВИХ МАТЕРІАЛІВ З РІЗНИМ СТУПЕНЕМ ДИСПЕРСНОСТІ

01.04.07 – фізика твердого тіла

### АВТОРЕФЕРАТ

дисертації на здобуття наукового ступеня  
кандидата фізико-математичних наук

Суми – 2001

Дисертацією є рукопис.

Робота виконана в Сумському державному університеті  
Міністерства освіти і науки України

Науковий керівник - кандидат фізико-математичних наук, доцент

**Чорноус Анатолій Миколайович**

доцент кафедри прикладної фізики

Сумського державного університету

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, професор

**Денисов Станіслав Іванович**

зав. кафедри загальної та експериментальної

фізики Сумського державного університету

кандидат фізико-математичних наук, доцент

**Лобода Валерій Борисович**

декан фізико-математичного факультету

Сумського державного педагогічного

університету ім. А.С.Макаренка

Провідна установа **Харківський національний технічний університет "ХПІ", кафедра матеріалознавства для електроніки та геліотехніки**

Захист відбудеться “ 03 ” липня 2001 р. о 14<sup>00</sup> годині на засіданні спеціалізованої вченої ради К.55.051.02 у Сумському державному університеті за адресою: 40007, м. Суми, вул. Р.-Корсакова, 2, корпус ЕТ, ауд. 216.

З дисертацією можна ознайомитися у бібліотеці Сумського державного університету.

Автореферат розісланий “ 01 ” червня 2001 р.

Вчений секретар

спеціалізованої вченої ради \_\_\_\_\_ А.С.Опанасюк

## ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

**Актуальність теми.** Фізичні явища у штучних зразках, розмір яких обмежений в одному з напрямків, постійно привертають увагу широкого кола науковців. Зацікавленість такими об'єктами зумовлена декількома причинами. Перш за все плівки металів, діелектриків і напівпровідників та металеві дроти знайшли широке використання у мікроелектроніці та функціональній електроніці при виготовленні активних і пасивних елементів, захисних шарів мікроелектронних виробів та створенні датчиків. Інтерес до вивчення властивостей плівкових шарів різних речовин у широкому інтервалі товщин також обумовлений можливістю появи нових перспективних матеріалів як для мікроелектронної, так і інших галузей виробництва, оскільки, керуючи умовами конденсації та подальшої обробки, можна отримати зразки з наперед заданими характеристиками. Поряд з цим, тонкі плівки та дроти своїми фізичними властивостями відрізняються від масивних об'єктів того ж самого складу, що становить інтерес для фундаментальних досліджень. Зокрема, величина питомого опору, температурного коефіцієнта опору (ТКО), коефіцієнта тензочутливості металевих шарів залежить від їх товщини та дисперсності кристалітів, що обумовлюється зовнішнім (розсіювання носіїв електричного заряду на поверхні плівки) та внутрішнім (розсіювання на межах зерен) розмірними ефектами, а також від наявності домішок та дефектів кристалічної будови. Вивчення зовнішнього розмірного ефекту (ЗРЕ), започаткованого Фуксом, знайшло продовження в роботах Зонгеймера, Лукаса, Чопри, Ларсона. Проблематиці, яка пов'язана з внутрішнім розмірним ефектом (ВРЕ), присвячені роботи Майядаса і Шатцкеса, Варкуша, Тельє, Тоссе і Пішара, Комника, Хоффмана, Мола і Хераса, Стасюка, Проценка та інших. Ними фактично розвинуто як у теоретичному, так і в експериментальному плані новий напрямок фізики тонких плівок – електронні процеси розсіювання на межі зерна.

На момент поставлення задачі досліджень було проведено вивчення впливу товщини і температури на величину питомого опору (провідності) і ТКО, здійснено розрахунок параметрів електропереносу у плівках металів, максимальна товщина яких у більшості випадків не перевищує 100-150 нм.

Поряд з цим, залишається не до кінця з'ясованим питання про те, як співвідносяться між собою величини параметрів електропереносу (довжина вільного пробігу носіїв електричного струму та коефіцієнти розсіювання і проходження межі зерна) у плівкових та масивних зразках в умовах проявлення ВРЕ. Для їх розрахунку бажано використати ті чи інші граничні співвідношення однієї теоретичної моделі, яка описує електропровідність у металевих зразках різного типу (плівки, масивні зразки). Такі вимоги певною мірою задовольняє модель Ухлінова-Косаківської, що залишилась поза увагою дослідників. Експериментально розв'язати цю

задачу можна шляхом комплексного дослідження кристалічної структури та ВРЕ у електрофізичних властивостях плівок у широкому інтервалі товщин і дротів різного діаметра.

Що стосується плівкових зразків, то актуальним залишається також питання про отримання співвідношень для питомої електропровідності і ТКО, які б враховували ВРЕ та були б адекватні експериментальній ситуації, тобто придатними для обробки експериментальних результатів у реальних плівкових зразках.

**Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами.** Частина роботи виконана у рамках держбюджетної теми №68.01.01.97-99 ДБ "Електрофізичні властивості багатошарових плівок в умовах взаємної дифузії елементів" Міністерства освіти і науки України.

**Мета і задачі дослідження.** Мета роботи полягає у встановленні закономірностей ВРЕ у електрофізичних властивостях металевих матеріалів з Cu, Ni та Mo, які мають різний ступінь дисперсності кристалітів в інтервалі проміжних температур, де розмірні ефекти виражені не так яскраво. Для досягнення мети роботи були розв'язані такі задачі:

- встановлено режими конденсації плівкових зразків товщиною до 400-600 нм, з низькою концентрацією дефектів кристалічної будови і параметром решітки, який відповідає масивним зразкам;
- вивчено структурні характеристики (середній розмір зерна, мікро-деформацію та параметр кристалічної решітки) плівкових зразків та дротів з використанням методів просвічувальної і растрової електронної мікроскопії, електронографії та рентгеноструктурного аналізу;
- досліджено температурну залежність питомого опору і ТКО в інтервалі 300-670 К у полікристалічних плівкових зразках;
- встановлено характер залежності питомого опору та ТКО від середнього розміру зерна ( $L$ ), товщини ( $d$ ) плівок або діаметра ( $D$ ) дротів;
- проведено розрахунок таких параметрів електропереносу: середньої довжини вільного пробігу (СДВП), коефіцієнтів розсіювання та проходження межі зерен на основі лінеаризованої і ізотропної моделей Тельє-Тоссе-Пішара, а також з використанням запропонованих асимптотичних співвідношень для питомого опору та ТКО у рамках теорії Майядаса-Шатцкеса в плівках і вперше на основі моделі Ухлінова-Косаківської в плівкових зразках і дротах та формул Дінгла і Нордгейма у дротах;
- проведено розділення вкладу поверхневого та зерномежового розсіювання електронів у величину загального питомого опору і ТКО.

Вибір в якості **об'єктів досліджень** плівок великої товщини і дротів Cu, Ni та Mo був пов'язаний з такими обставинами:

- наявністю у літературі даних про електропровідність переважно тонких ( $d < 100\text{--}150$  нм) плівок та відсутністю аналогічних результатів для товстих зразків;
- підбором умов осадження можна отримати конденсати з різним співвідношенням між середнім розміром кристалітів і товщиною у напрямку протікання електричного струму ( $L/d > 1$  (Cu),  $L/d \approx 1$  (Ni),  $L/d < 1$  (Mo)), що дозволяє застосувати відомі теоретичні моделі.

#### **Наукова новизна одержаних результатів.**

1. Отримані нові експериментальні дані про вплив кристалічної структури (середнього розміру зерна) на ВРЕ у електропровідності і ТКО для плівок Cu, Ni і Mo товщиною до 400-600 нм.
2. Вперше здійснено апробацію моделі Ухлінова-Косаківської для електропровідності металевих зразків і показано, що у випадку моноблочних плівок Cu, Ni та дрібнозернистих – Mo її відповідні асимптотичні співвідношення однаковою мірою із лінеаризованою та ізотропною моделями Тельє-Тоссе-Пішара описують експериментальні результати.
3. Проведено порівняльний аналіз даних про величину параметрів електропереносу (СДВП, коефіцієнти розсіювання на межі зерна та дзеркальності зовнішніх поверхонь) у плівках з різними значеннями середнього розміру кристалітів та дротах, з якого випливає, що у дротах середня довжина вільного пробігу в  $(0,7\text{--}6,7) \times 10^2$  рази більша, а коефіцієнт розсіювання на межі зерна у 3-5 разів менший порівняно з плівками.
4. Запропоновані точні і асимптотичні співвідношення для питомого опору (провідності) і ТКО полікристалічних плівок у рамках теорії Майядаса-Шатцкеса для різних граничних випадків значень приведеної товщини та параметра зерномежового розсіювання. Розроблено методику обробки експериментальних результатів на основі отриманих виразів у реальних плівкових зразках, яка дозволяє провести розрахунок значення коефіцієнта зерномежового розсіювання.

#### **Практичне значення одержаних результатів.**

1. Одержані систематичні дані з комплексного дослідження кристалічної структури, ВРЕ у електропровідності та ТКО у плівках у широкому інтервалі товщин і дротах Cu, Ni і Mo мають безпосередню практичну цінність в плані накопичення експериментальних результатів про величину СДВП та коефіцієнт зерномежового розсіювання для подальшого розвитку теоретичних уявлень про кінетичні явища у конденсованих шарах металів.
2. Отримані асимптотичні співвідношення для питомого опору (провідності) і ТКО та запропонована методика обробки експериментальних результатів на їх основі. Співвідношення мають самостійну практичну цінність і можуть бути використані експериментаторами для розрахунку параметрів електропереносу в плівкових матеріалах.
3. Встановлено режими осадження плівок Cu, Ni і Mo товщиною до 400-600 нм, які мають малу концентрацію дефектів кристалічної будови і низький рівень мікронапружень.

**Особистий внесок здобувача.** Аналіз літературних джерел, отримання зразків плівок та дрітків, поставлення експериментів, пов'язаних з дослідженням температурної залежності опору, визначення товщини, електронною мікроскопією та електронографією. Обробку результатів дисертант виконав самостійно. Особисто автором підготовлено дві статті [1, 3], сім тез доповідей, обговорено матеріали робіт [2, 4-6, 9].

**Апробація результатів дисертації.** Основні результати роботи доповідались та представлялись на таких наукових конференціях: Міжнародній конференції з модифікації властивостей поверхневих шарів ненапівпровідникових матеріалів MPSL-99 (Суми, 1999 р.); VII та VIII Міжнародних конференціях з фізики та технології тонких плівок (Івано-Франківськ, 1999, 2001 рр.); 3-му Міжнародному симпозіумі "Вакуумні технології та обладнання" (Харків, 1999 р.); Науково-технічних конференціях викладачів, співробітників, аспірантів та студентів фізико-технічного факультету (Суми, 1999, 2000, 2001 рр.) та механіко-математичного факультету СумДУ (Суми, 2001 р.); 3-му Всеросійському семінарі "Нелінійні процеси та проблеми самоорганізації в сучасному матеріалознавстві" (Воронеж, Росія, 2000 р.); 12-му Міжнародному симпозіумі "Тонкі плівки в електроніці" (Харків, 2001р.).

**Публікації.** Основні матеріали дисертації відображені у 14 публікаціях, із них 10 наведені у списку опублікованих праць в авторефераті.

**Структура і зміст роботи.** Дисертаційна робота складається зі вступу, п'яти розділів, загальних висновків, списку використаних джерел. Обсяг дисертації складає 140 сторінок, у тому числі 58 рисунків та 21 таблиця. Список використаних джерел містить 121 найменування.

## ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У вступі обґрунтовано актуальність теми дисертаційної роботи, сформульовані мета та задачі досліджень, визначені наукова та практична значущість результатів, внесок здобувача та наведено структуру роботи.

Перший розділ "Теоретичні моделі та експериментальні результати з електропровідності плівок металів та дрітків" являє собою літературний огляд та складається з п'яти підрозділів.

У першому підрозділі розглядаються співвідношення теорії Фукса-Зондгеймера (теорія ФЗ). На основі аналізу літературних даних про їх застосування при обробці результатів експерименту робиться висновок про можливість використання виразів теорії ФЗ для розрахунку параметрів електропереносу у полікристалічних плівкових зразках металів.

У другому підрозділі наведено співвідношення для питомої провідності ( $\sigma$ ) (опору ( $\rho$ )) Майядаса-Шатцкеса (теорія МШ) [1], яке враховує ВРЕ у металевих плівкових зразках, у вигляді

$$\frac{\sigma}{\sigma_{\infty}} = \frac{\rho_{\infty}}{\rho} = f(\alpha) - \frac{3}{\pi k} \int_0^{\pi/2} d\Phi \cos^2 \Phi \int_0^1 dt \frac{(t-t^3)(1-\varepsilon)}{H^2(t, \Phi)} \times \frac{2-p_1-p_2+(p_1+p_2-2p_1p_2)\varepsilon}{1-p_1p_2\varepsilon^2}, \quad (1)$$

де  $\sigma_{\infty}$ ,  $\rho_{\infty}$ , - питомий опір і провідність нескінченно товстого зразка;  $f(\alpha)$ ,  $\alpha = \lambda L^{-1} \cdot R(1-R)^{-1}$ ,  $R$  – функція, параметр та коефіцієнт зерномежового розсіювання;  $k=d/\lambda$  - зведена товщина ( $\lambda$  - СДВП);  $\varepsilon = \exp(-kHt^{-1})$ ;  $H(t, \Phi) = 1 + \frac{\alpha}{\cos \Phi \sqrt{1-t^2}}$  ( $t$ ,  $\Phi$ - змінні інтегрування, пов'язані з кутом підльоту носіїв струму до зовнішніх поверхонь та меж зерен відповідно);  $p_1$  та  $p_2$  – параметри дзеркальності зовнішніх поверхонь плівки.

Співвідношення (1) нами було використано (підрозділ 5.3) при отриманні асимптотичних виразів для питомої провідності і ТКО.

Теорія МШ була застосована Тельє, Тоссе та Пішаром [2] при отриманні виразів, які придатні для обробки результатів експерименту (моделі ТТП). Так, якщо  $L > d$ , формула для ТКО ( $\beta$ ) у рамках лінеаризованої моделі така:

$$\beta \cdot d \cong \beta_{\infty} \cdot d - \beta_{\infty} \cdot \lambda (1-p) H(\alpha), \quad (2)$$

де  $\beta_{\infty}$  - ТКО при  $d \rightarrow \infty$ .

У рамках моделі ізотропного розсіювання, яка може бути застосована у випадку  $L < d$ , співвідношення для ТКО мають вигляд:

$$\beta^{-1} \cdot d \cong \beta_{\infty}^{-1} \cdot d + \frac{3}{8} \beta_0^{-1} \lambda \ln(p^{-1}), \quad \beta_{\infty} \cdot \beta_0^{-1} \cong [1 + 1,45 L^{-1} \lambda \ln(r^{-1})]^{-1}, \quad (3)$$

де  $\beta_0$  – ТКО масивного зразка;  $R(R-1)^{-1} \cong 0,97 \ln(r^{-1})$  при  $r > 0,3$ .

Оскільки розглянуті вирази не до кінця враховують реальну кристалічну будову плівки, у третьому підрозділі проаналізовано вплив розміру та форми зерна на електропровідність полікристалічних плівкових зразків. Співвідношення для питомої провідності у рамках моделі Ухлінова-Косаківської (модель УК) [3], яке можна використовувати як для плівкових, так і для масивних зразків, має вигляд

$$\sigma = \frac{3}{2} \sigma_0 \int_0^{\pi/2} \frac{\sin^3 \theta d\theta}{1 + (1/K_{Lx}) \sin \theta + (1/K_{Lz}) \cos \theta}, \quad (4)$$

де  $\sigma_0$ - питома провідність масивного монокристала;  $K_{Lx} = L_x \cdot \lambda^{-1} (1-R)^{-1}$  та  $K_{Lz} = L_z \cdot \lambda^{-1} (1-R)^{-1}$ ;  $L_x$ ,  $L_z$ - ширина і висота зерна у напрямках  $x$  і  $z$  відповідно.

Для моноблочних зразків ( $L_x \gg L_z$ ) у випадку  $K_{Lz} > 1$  останній вираз перетворюється до вигляду

$$\sigma = \left(1 - \frac{3}{8K_{Lz}}\right) \sigma_0. \quad (5)$$

Четвертий підрозділ містить огляд експериментальних результатів дослідження впливу товщини (до 100-150 нм) на електропровідність плівок Cu, Ni і Mo. Провівши їх аналіз, було зроблено висновок, що залишається невивченим питання про співвідношення параметрів електропереносу в масивних та плівкових зразках та про вплив ступеня дисперсності кристалітів.

У п'ятому підрозділі наведено формули Дінгла та Нордгейма, які описують електропровідність дротів круглого і квадратного перерізу.

Другий розділ "Методика та техніка проведення експериментальних досліджень" містить інформацію про методики осадження та післяконденсаційної обробки плівок, методи проведення структурних досліджень, вимірювання електроопору.

Плівки металів отримували і відпалювали у вакуумі  $\sim 10^{-3}$ - $10^4$  Па. Конденсація проводилась методом термічного (Cu) та електронно-променевого випаровування (Ni, Mo) одночасно на датчик опору (скляна полірована пластина із вплавленими молібденовими стрижнями), відкол NaCl з шаром вуглецю для проведення електронно-мікроскопічних та електронографічних досліджень та на скляні пластини для вимірювання товщини. Оптимальна температура підкладки ( $T_p$ ) та швидкість конденсації ( $\omega$ ) склали для Cu 300 і 1,5-3, Ni – 600 і 0,2-0,5; 700 K і 1 нм/с для Mo. Плівки на монокристалічних підкладках з діелектриків лейкосапфіру та ніобату літію ( $\text{LiNbO}_3$ )\* були отримані при  $T_p$  570 K (Cu) та 670 K (Ni).

Вивчення структурних характеристик проводилось з використанням електронних мікроскопів ЕММА-4, ПЕМ-125K і РЕММА-102 та рентгенівського дифрактометра ДРОН-2.0.

Третій розділ "Кристалічна структура плівок та дротів" складається із чотирьох підрозділів. У першому підрозділі наводяться результати вивчення структурних характеристик полікристалічних плівок товщиною до 400 нм. На основі електронограм (типові ілюструє рис. 1) було отримано дані про інтенсивність ліній (після фотометричних досліджень) та величину міжплощинних відстаней і параметра решітки.

З отриманих результатів можна зробити такі висновки. Інтенсивність ліній на дифрактограмах від відповідних кристалографічних площин для полікристалічних плівок і масивних зразків однакова, що свідчить про відсутність текстури та ізотропного розподілу кристалітів за розмірами. Плівкові зразки мають кристалічну решітку, яка відповідає ГЦК-фазі (Cu, Ni) і ОЦК-фазі (Mo) з параметрами решітки  $0,3615 \pm 0,001$  (Cu);  $0,3525 \pm 0,001$  (Ni);  $0,318$ - $0,314$  нм (Mo), які є близькими до аналогічних параметрів у масивних зразках та фактично не залежать від товщини у дослідженому інтервалі її значень.



Обробка даних електронно-мікроскопічних досліджень (рис.2) показала, що для плівок Ni при  $d \leq 400$  нм  $L = k_1 d$ , де коефіцієнт пропорційності  $k_1 \approx 1$ . Для Cu  $L \approx k_2 d$ , де  $k_2 \approx (1,5-2)$  при  $d < 180$  нм, при більш високих товщинах середній розмір зерна має слабку розмірну залежність. Що стосується плівок Mo, для них при товщинах  $d < 100$  нм  $L \approx 10$  нм. Плівки Cu та Ni, які отримані на підкладці з  $\text{LiNbO}_3$ , мають переважну орієнтацію зерен, розмір яких у 2-3 рази більший, ніж для полікристалічних.

*Рис.1. Електронограми для плівок Cu (а), Ni (б) та Mo(в). Товщина, нм: 75 (а), 100 (б), 55 (в)*

\* Автор вдячний Білоногову Є.К. за допомогу в підготовці підкладок.

*Рис.2. Мікроструктура плівкових зразків Cu(а), Ni(б), Mo (в). Товщина, нм: 75 (Cu); 100 (Ni); 55 (Mo).*

У третьому підрозділі наводяться дані РЕМ-досліджень кристалічної структури дротів. Вони показали, що дроти Ni з середнім розміром зерна  $L = 100$  мкм та Cu із  $L = 3-4,5$  мкм не мають текстури, на відміну від аналогічних зразків Mo, для яких ширина зерна є набагато меншою від довжини і складає 4,5 мкм.

Останній підрозділ присвячений обговоренню результатів. У ньому розглянуто питання про ступінь мікродеформації кристалічної решітки, утворення домішкових фаз в наслідок взаємодії з атомами газів залишкової атмосфери і матеріалу підкладки, про вплив товщини на середній розмір зерна у плівкових зразках та ступінь узгодження даного параметра з аналогічним для дротів і відомими літературними даними.

Четвертий розділ "Вплив температури на електрофізичні властивості полікристалічних плівок" містить чотири підрозділи та охоплює коло питань, які пов'язані з термостабілізацією електричних властивостей, температурною залежністю питомого опору і ТКО в інтервалі проміжних її значень, розрахунком параметра електрон-фононої взаємодії  $c^* = \text{tg} \alpha \cdot \Theta_D^3 \cdot T^{-2} \cdot J_3^{-1}(\Theta_D/T)$  ( $\text{tg} \alpha$  – тангенс кута нахилу лінійної залежності  $\rho(T)$ ;  $\Theta_D$ ,  $J_3(\Theta_D/T)$  – температура та інтеграл Дебая).

Розрахунок енергії активації заліковування дефектів кристалічної будови у свіжосконденсованих зразках був проведений на основі залежності опору від температури протягом першого і другого циклів з використанням методики Венда. На залежності функції розподілу від енергії простежується декілька максимумів з енергіями заліковування дефектів  $E_m$ , що є меншими від 1eВ. Порівняння отриманих значень  $E_m$  з енергіями самодифузії, активації дифузії атомів газів та аналіз літературних даних показують, що основними дефектами кристалічної будови є комплекс "вакансія - домішковий атом залишкової атмосфери".

На температурних залежностях питомого опору та ТКО простежуються особливості при температурах: Дебая (Cu, Ni, Mo),  $T=460-500\text{K}$  (Cu), Кюрі (Ni) та  $2/3$  температури Дебая (Mo). Вище температур Дебая (у плівках Cu і Mo) та Кюрі (у плівках Ni) залежність  $\rho(T)$  стає лінійною.

Величина тангенса кута нахилу лінійної залежності та  $c^*$  із збільшенням товщини зменшується і, починаючи з  $d=130\text{ нм}$  (Cu),  $180\text{ нм}$  (Ni) та  $115\text{ нм}$  (Mo), перестає бути розмірно залежною. Подібні ефекти пояснюються збільшенням граничної частоти фононного спектру в області малих товщин та дією макронапружень. Нами відмічається, що певний вплив на характер температурної залежності  $\rho(T)$  має зерномежове розсіювання електронів, яке, на відміну від поверхневого розсіювання, може проявлятися при великих товщинах зразків.

У четвертому підрозділі проаналізовано питання про температурну залежність величини  $\Delta\rho_i=[(\rho(T)-\rho_{\text{зал}})-(\rho_0(T)-\rho_{0\text{зал}})]$  ( $\rho_{\text{зал}}$ ,  $\rho_{0\text{зал}}$  – залишковий питомий опір для плівки і масивного зразка відповідно), що обумовлено не тільки поверхневим, а і зерномежовим розсіюванням електронів.

П'ятий розділ "Вплив ступеня дисперсності кристалітів на електрофізичні властивості металевих конденсатів та дротів" складається із чотирьох підрозділів.

У першому підрозділі наводяться результати експериментальних досліджень про те, як впливають на величину питомого опору та ТКО товщина плівки, діаметр дроту та розмір зерна. Рис.3 ілюструє отримані результати. На всіх залежностях простежується загальна, відповідна до теоретичних уявлень тенденція до зміни  $\rho$  і  $\beta$ , що проявляється відповідно у зменшенні або збільшенні їх величини, яка прямує до асимптотичних значень  $\rho_\infty$  та  $\beta_\infty$ . На розмірних залежностях в плівках Mo виділяються дві ділянки з відмінною тенденцією до зміни  $\rho$  і  $\beta$ , що обумовлено різним середнім розміром зерна у конденсатах товщиною менше та більше  $d^*=190\text{ нм}$ . Розподіл внеску зерномежового та поверхневого розсіювання електронів у величини  $\rho$  і  $\beta$  за відомою методикою показало, що роль поверхневого розсіювання зменшується із збільшенням товщини, а основним механізмом, який обумовлює втрату енергії електронами провідності, є їх зіткнення з межами зерен, фононами і дефектами кристалічної будови. Для плівок, які отримані на монокристалічній підкладці, величина опору, який обумовлений розсіюванням на зовнішніх поверхнях, є менша, ніж для полікристалічних, що пов'язано з більшим коефіцієнтом дзеркальності у першому випадку.

Другий підрозділ присвячений обробці розмірних залежностей у електрофізичних властивостях на основі теоретичних співвідношень з

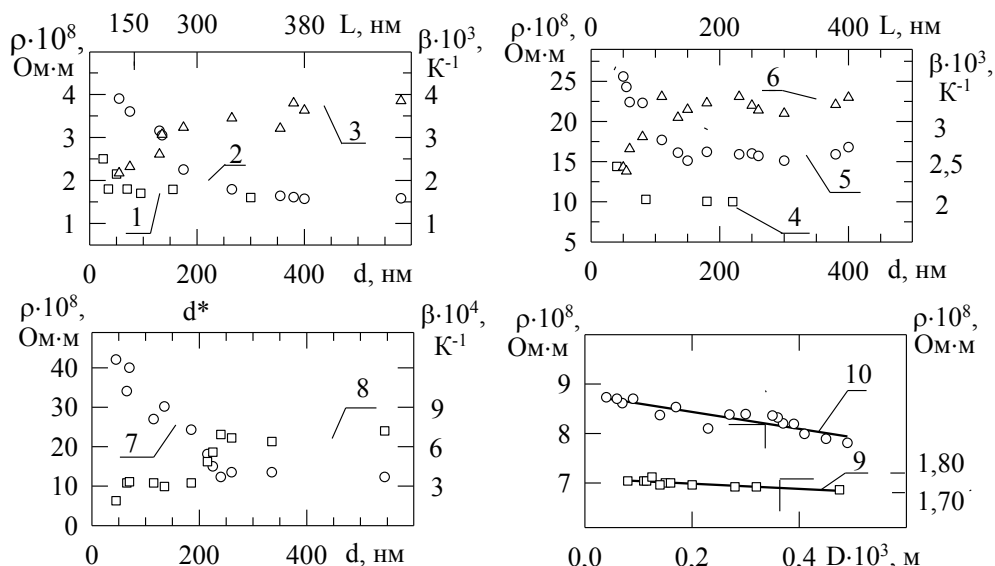


Рис.3. Розмірні залежності питомого опору та ТКО для плівок Cu (1-3), Ni (4-6), Mo (7, 8) та дротів Cu (9) і Ni (10):

1, 4 – плівки, які отримані на підкладці з  $\text{LiNbO}_3$ ;

2, 3, 5, 6, 7, 8 – полікристалічні плівки.

метою визначення параметрів електропереносу. Про отриманий результат можна судити з табл.1. Застосування моделей ТТП для полікристалічних плівок міді проводилось для ділянки розмірної залежності ТКО, де середній розмір зерна можна вважати незалежним від товщини. При розрахунках  $\rho$  та  $R$  на основі ізотропної моделі у плівках Cu та Ni використовувались дані про величину СДВП, визначену в лінеаризованій у наближенні дифузного розсіювання електронів. Для полікристалічних плівок Ni середній розмір зерна є функцією товщини, тому нами проводилась оцінка значень коефіцієнта  $R$  у інтервалі розмірів зерен. Оскільки ізотропна модель не дозволяє одночасно визначити  $\lambda$  та  $\rho$ , то у випадку плівок Mo доводилось задаватись величиною  $\rho$  у визначеному в таблиці інтервалі.

Розмірна залежність питомого опору плівок, які були осаджені на монокристалічних підкладках, оброблялась на основі співвідношення (5) моделі УК. У результаті цього було отримано величину  $\lambda(1-\rho)$ , яка складає 31 та 27 нм, відповідно для зразків Cu та Ni, що є меншим порівняно з полікристалічними плівками. Такий результат пов'язаний з меншим значенням коефіцієнта дзеркальності зовнішніх поверхонь у полікристалічних плівках. Використавши величину СДВП, визначену для полікристалічних зразків у дифузному наближенні на основі моделі УК, було отримано  $\rho=0,18$  для плівок Ni/ $\text{LiNbO}_3$  та  $\rho=0,6$  для Cu/ $\text{LiNbO}_3$ . Порівняння одержаних даних про значення коефіцієнта дзеркальності у плівкових зразках різних матеріалів показує, що його величина визначається ступенем дисперсності кристалітів.

Асимптотичні вирази (2) і (3), запропоновані ТТП у рамках теорії МШ, є послідовними і дозволяють коректно проводити розрахунок параметрів електропереносу, якщо плівкові зразки

задовольняють пред'явленим до них вимогам. Так, зокрема середній розмір зерна не повинен залежати від товщини, що експериментально досягти не завжди вдається. Якщо  $L$  є функцією товщини, тоді застосування лінеаризованих співвідношень не завжди буде обґрунтованим, а значення параметрів електропереносу в цьому випадку будуть мати оцінний характер. У зв'язку з цим у рамках теорії МШ з використанням співвідношення (1) отримані асимптотичні вирази для питомого опору та ТКО полікристалічних плівок для різних граничних випадків значень приведеної товщини ( $k \gg 1$ ,  $k \ll 1$ ) та параметра зерномежового розсіювання

Таблиця 1

Параметри електропереносу для полікристалічних  
плівок і дрітів Cu, Ni і Mo

Зразок		Теоретичні моделі і співвідношення										
		лінеаризована ТТП			ізотропна ТТП			УК			Дінгла	Нордгейма
		$\lambda$ , нм	R	$\rho$	$\lambda$ , нм	R	$\rho$	$\lambda$ , нм	R	$\rho$	$\lambda$ , мкм	$\lambda$ , мкм
Cu	Плівка	83	0,11	0	-	0,05	0,14	85	-	0	-	-
	Дріт	-	-	-	-	-	-	$5,9 \cdot 10^3$	0,09	-	7,7	4,7
Ni	Плівка	32	$0,31 \div 0,75$	0	-	$0,26 \div 0,68$	0,08	33	-	0	-	-
	Дріт	-	-	-	-	-	-	$11,7 \cdot 10^3$	0,10	-	17,4	14,0
Mo	Плівка $d < d^*$	-	-	-	$12 \div 19$	$0,66 \div 0,65$	$0,01 \div 0,05$	10	0,69	-	-	-
	Плівка $d > d^*$	-	-	-	$28 \div 45$	$0,61 \div 0,53$	$0,01 \div 0,05$	12	0,60	-	-	-
	Дріт	-	-	-	-	-	-	$0,30 \cdot 10^3$	0,50	-	2,5	5,6

( $\alpha \gg 1$ ,  $\alpha \ll 1$ ), які можна використовувати як функцію точки при обробці експериментальних результатів у реальних плівкових зразках. Співвідношення, методика та результати розрахунку

параметрів електропереносу наведені у третьому розділі. Так, для граничного випадку  $k \gg 1$  та  $\alpha \ll 1$  вирази для питомої провідності та ТКО відповідно мають такий вигляд:

$$\frac{\sigma}{\sigma_{\infty}} = \frac{\rho_{\infty}}{\rho} = 1 - \frac{3}{2}\alpha - \frac{3(2-p_1-p_2)}{16k} \left[ 1 - \frac{32}{3\pi}\alpha \right], \quad (6)$$

$$\frac{\beta}{\beta_{\infty}} = 1 - \frac{3}{2}\alpha - \frac{3(2-p_1-p_2)}{16k} \left[ 1 - \frac{12}{\pi}\alpha \right]. \quad (7)$$

Допускаючи умову  $\lambda = \text{const}$  та змінюючи величину  $\alpha$  для кожної конкретної товщини, вдалось реалізувати співпадання розрахункових і експериментальних значень у даній точці. Це дозволило встановити наступне. Для плівок Ni має місце слабка розмірна залежність коефіцієнта R, який складає 0,37-0,46 у інтервалі товщин 50-400 нм. У плівкових зразках Cu в інтервалі товщин 55-175 нм  $R=0,35-0,42$ , при більш великих значеннях  $d$   $R=0,08$ . Для плівок Mo при  $d < d^*$   $R=0,66$ , якщо  $\lambda=10$  нм, а при  $d > d^*$   $R=0,60$  ( $\lambda=12$  нм). Незначне збільшення коефіцієнта R для плівок Ni та Cu, на нашу думку, обумовлене не зовсім точним припущенням про незалежність СДВП від товщини.

Четвертий підрозділ присвячений аналізу одержаних результатів про величини СДВП та коефіцієнта R у всіх досліджених зразках. Він показує, що значення середньої довжини вільного пробігу та коефіцієнта зерномежового розсіювання у полікристалічних зразках визначається ступенем дисперсності кристалітів. Причому збільшення середнього розміру зерна призводить до збільшення значення СДВП та зменшення величини коефіцієнта R.

У кінці четвертого підрозділу наведені дані про залежність  $\lambda$ ,  $\rho$ , R та  $\rho_{\infty}\lambda$  від температури в області проміжних її значень. Показано, що в інтервалі  $T=300-670\text{K}$  величина добутку  $\rho_{\infty}\lambda$  та коефіцієнта дзеркальності не залежить від температури на відміну від значень СДВП та коефіцієнта розсіювання на межі зерна.

У висновках подано перелік та стислу характеристику основних результатів роботи.

## ВИСНОВКИ

1. Методами просвічувальної електронної мікроскопії та електронографії проведено вивчення кристалічної структури у полікристалічних плівкових зразках (товщиною до 400-600 нм) Cu, Ni та Mo (параметри решітки  $a=0,3615 \pm 0,001$ ;  $0,3525 \pm 0,001$  та  $0,318-0,314$  нм відповідно), у яких відсутня текстура і має місце низький рівень мікронапружень; встановлені залежності середнього розміру зерна від товщини, які поряд із розмірними залежностями для питомого опору і ТКО послужили експериментальною основою для вивчення ВРЕ.
2. Експериментально показано, що на температурній залежності питомого опору та ТКО у полікристалічних плівкових зразках Cu, Ni та Mo спостерігаються особливості при температурах Дебая (Cu, Ni, Mo),  $T \approx 480-500$  K (Cu), Кюри (Ni) і  $2/3\theta_D$  (Mo), що було враховано

при обробці результатів експерименту (вибір необхідних температурних інтервалів) у рамках моделей для ВРЕ.

3. На основі експериментальних результатів показано, що частка питомого опору, який обумовлений розсіюванням електронів на зовнішніх поверхнях плівки, зменшується із зростанням середнього розміру зерна, що пояснюється збільшенням коефіцієнта дзеркальності поверхонь.
4. Вперше здійснено обробку експериментальних результатів з електропровідності полікристалічних металевих плівок на основі моделі Ухлінова-Косаківської; це дало можливість показати, що різні асимптотичні співвідношення цієї моделі, які відповідають граничним умовам застосування виразів лінеаризованої та ізотропної моделей Тельє-Тоссе-Пішара приблизно однаковою мірою враховують ВРЕ.
5. У рамках теорії Майядаса-Шатцкеса отримані асимптотичні вирази для питомого опору та ТКО полікристалічних плівок для різних граничних випадків, значень приведеної товщини ( $k \gg 1$ ,  $k \ll 1$ ) та параметра зерномежового розсіювання ( $\alpha \gg 1$ ,  $\alpha \ll 1$ ), які можна використовувати як функцію точки при обробці результатів експерименту; на основі цих формул запропонована методика та проведено розрахунок значення коефіцієнта розсіювання на межі зерна при  $\lambda \cong \text{const}$  у плівках Cu, Ni та Mo.
6. Вперше проведено порівняння СДВП у плівках (товщиною до 400-600 нм) та дротах (діаметром до 0,5 мм)  $\lambda_d/\lambda_{np} \approx (0,7-1,4) \times 10^2$  (Cu);  $\lambda_d/\lambda_{np} \approx (3,6-6,7) \times 10^2$  (Ni) та  $\lambda_d/\lambda_{np} \approx (4,8-5,6) \times 10^2$  (Mo); відміна цих величин пов'язана із ступенем дисперсності кристалітів.
7. На основі аналізу даних дослідження ВРЕ показано, що величина коефіцієнта розсіювання на міжкристалітних межах визначається ступенем дисперсності, причому збільшення середнього розміру зерна в дротах міді та нікелю призводить до зменшення коефіцієнта R у 3-5 разів відносно відповідних плівкових зразків.

### **СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ**

1. Білоус О.А., Кшнякін В.С., Черкаська В.О., Черноус А.М. Електрон-фононна взаємодія у конденсатах міді // Вісник СумДУ. -1999.-№2(13).-С.22-25.
2. Белоус Е.А., Черноус А.Н. Зернограничное рассеяние электронов в пленках меди // ВАНТ.-1999.-Вып.1(9).-С.76-78.
3. Белоус Е.А., Зелев С.Ф., Клименко О.Г., Токмань В.В. Кристаллическая структура и электропроводность пленок никеля // Вісник СумДУ.-2000.-№17.-С.47-53.

4. Білоус О.А., Дехтярук Л.В., Чорноус А.М. Розмірно-кінетичні ефекти у полікристалічних металевих плівках Cu та Ni // Металлофиз. новейшие технол. –2001. –Т.23, №1. –С.43-50.
5. Білоус О.А., Дехтярук Л.В., Проценко С.І., Чорноус А.М. Розмірні ефекти у термічному коефіцієнті опору та коефіцієнті розсіювання електронів на межі зерен в тонких металевих плівках // Вісник СумДУ. -2001.-№3(24), 4(25). -С. 67-73.
6. Білоус О.А., Токмань В.В., Чорноус А.М. Вплив товщини конденсатів Ni, Cu та Mo на структурні характеристики // Збірник доповідей 12-го Міжнародного симпозіуму "Тонкі плівки в електроніці". –Харків: ННЦ ХФТІ, 2001. –С.177-181.
7. Белоус Е.А., Дехтярук Л.В., Проценко С.И., Чорноус А.Н. Влияние толщины на температурный коэффициент удельного сопротивления в пленках металлов // Материалы III Всероссийского семинара "Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении". -Воронеж: ВГТУ. –2000. –С.87-88.
8. Belous O., Chornous A., Cherkaska V., Kulish V. Temperature dependence of electrical resistivity and temperature coefficient of resistivity in thin copper films // Abstract booklet Third International Conference MPSL-99.-Sumy: SSU.- 1999.-P.64.
9. Дехтярук Л.В., Білоус О.А., Чорноус А.М. До теорії розмірно-кінетичних ефектів у полікристалічних плівках // Матеріали VII Міжнародної конференції з фізики і технології тонких плівок. –Івано-Франківськ:ПДУ -1999. -С.113.
10. Білоус О.А., Чорноус А.М. Явища електропереносу у дрібнозернистих плівках молібдену // Матеріали VIII Міжнародної конференції з фізики і технології тонких плівок. –Івано-Франківськ: ПДУ -2001. -С.255-256.

#### **Цитована література**

1. Mayadas A.F., Shatzkes M. Electrical-Resistivity Model for Polycrystalline films: the Case of Arbitrary Reflection on External Surface // Phys. Rev. B. -1970. - V.1. №4. -P.1382-1389.
2. Tellier C.R., Tosser A.J. Size Effects in Thin Films. -Amsterdam-Oxford-New-York: Elsevier Scientific Publ. Company, 1982.- 310 p.
3. Ухлинов Г.А., Косаковская З.Я. Электропроводимость поликристаллических образцов металлов с формразмерной текстурой // ФММ.-1983.-Т. 53, №1.- С.61-64.

#### **АНОТАЦІЯ**

Білоус О.А. Внутрішній розмірний ефект в електрофізичних властивостях металевих матеріалів з різним ступенем дисперсності.-Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук за спеціальністю 01.04.07-фізика твердого тіла. –Сумський державний університет, Суми, 2001.

До захисту подані результати досліджень, які викладено у 10 наукових публікаціях. Дисертація присвячена встановленню закономірностей внутрішнього розмірного ефекту в електрофізичних властивостях металевих матеріалів (плівки товщиною до 400-600 нм та дроти) з Cu, Ni та Mo, які мають різний ступень дисперсності кристалітів у інтервалі проміжних температур. Розрахунок параметрів електропереносу (середня довжина вільного пробігу носіїв електричного струму (СДВП), коефіцієнта розсіювання на межі зерна) проводився на основі лінеаризованої, ізотропної моделей Тельє-Тоссе-Пішара та моделі Ухлінова-Косаківської, а також запропонованих асимптотичних співвідношень теорії Майядаса-Шатцкеса. Для обробки даних експерименту у дротах були використані формули Дінгла, Нордгейма та Ухлінова-Косаківської. Узагальнення отриманих результатів показало, що у дротах величина коефіцієнта розсіювання на межі зерна у 3-5 разів менша, а СДВП у  $(0,7-6,7) \times 10^2$  разів більша порівняно з плівками та визначається ступенем дисперсності кристалітів.

Ключові слова: внутрішній розмірний ефект, тонкі плівки, параметри електропереносу, коефіцієнт розсіювання на межі зерна, середня довжина вільного пробігу, питомий опір, температурний коефіцієнт опору, теорія Майядаса-Шатцкеса.

## АННОТАЦИЯ

Белоус Е.А. Внутренний размерный эффект в электрофизических свойствах металлических материалов с разной степенью дисперсности. - Рукопись.

Диссертация на соискание научной степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07-физика твердого тела. – Сумский государственный университет, Сумы, 2001.

К защите представлены результаты исследований, изложенные в 10 научных публикациях. Диссертация посвящена установлению закономерностей внутреннего размерного эффекта в электрофизических свойствах металлических материалов (пленки толщиной до 400-600 нм и проволоки диаметром до 0,5 мм) Cu, Ni и Mo, которые имеют разную степень дисперсности кристаллитов. Так, соотношение между средним размером зерна (L) и толщиной (d) в пленках в направлении протекания электрического тока составляет  $L/d > 1$  (Cu),  $L/d \approx 1$  (Ni),  $L/d < 1$  (Mo). В проволоках Ni  $L \approx 100$  мкм, Cu  $L \approx 3-4,5$  мкм, Mo ширина зерна больше толщины и составляет 4,5 мкм. Используя модели электропроводности и экспериментальные результаты в виде зависимостей удельного сопротивления и температурного коэффициента сопротивления от толщины или диаметра, а также данные о среднем размере зерна, рассчитаны параметры электропереноса (средняя длина свободного пробега носителей электрического тока (СДСП),



коэффициент рассеяния на границе зерна). В случае пленочных образцов использовались **линеаризованная**, изотропная модели **Телье-Тоссе-Пишара** и модель **Ухлинова-Косаковской**. Для обработки результатов **эксперимента** в проволоках применялись формулы **Дингла**, **Нордгейма** и **Ухлинова-Косаковской**. Для расчета величины коэффициента рассеяния на границе зерна в пленках также были использованы предложенные в рамках теории Майядаса-Шатцкеса асимптотические соотношения для удельного электросопротивления и температурного коэффициента сопротивления. Проведено сравнение и **обобщение** полученных результатов. Показано, что величина коэффициента рассеяния на **границе** зерна и **СДСП** определяется степенью дисперсности **кристаллитов**. Увеличение среднего размера кристаллитов в проволоках приводит к уменьшению коэффициента зернограницного рассеяния в 3-5 раз и увеличению в  $(0,7-6,7) \times 10^2$  раз величины СДСП по отношению к пленочным образцам.

Ключевые слова: **внутренний** размерный эффект, тонкие пленки, параметры **электропереноса**, коэффициент рассеяния на **границе** зерна, средняя длина свободного пробега, удельное сопротивление, температурный коэффициент сопротивления, теория **Майядаса-Шатцкеса**.

## THE SUMMARY

Belous O.A. Internal size effect in physical properties of metal materials with a different degree of a dispersibility. - Manuscript.

Thesis for the candidate of physical and mathematical sciences on a speciality 01.04.07-Solid state physics - Sumy State University, Sumy, 2001.

To protection represented results of investigation, which are explained in 10 scientific publications. The thesis is devoted to installation of legitimacies internal size effect in electrophysical properties of Cu, Ni and Mo metal materials (film by width up to 400-600 nm and wire), which have a different degree of a cristalls dispersibility in an interval of intermediate temperatures. Accounts of parameters of electrocarry (the mean free path of an electrical current, coefficient of grainboundary scattering) was carried on base of linear, isotropic Tellier, Tosser and Pishar models and model of Ukhlinov-Cosakovskaya, and also offered asymptotic relations of the Mayadas and Shatzkes theory. For data processing of experiment in wires were used a model of Dihgl and Nordhem and model of Ukhlinov-Cosakovskaya. The matching and generalisation of obtained results carried out. Is shown, that the value of grainboundary scattering coefficient and mean free path of an electrical current determined by a degree of a crystallites dispersibility. The increase of the crystallites average size of in wires reduces to decrease of grainboundary scattering coefficient in 3-5 times and increase in  $(0,7-6,7) \times 10^2$  times of mean free path value in relation to film samples.

Key word: internal size effect, thin films, parameters of electrocarry, grainboundary scattering, the mean free path of an electrical current, specific resistance, temperature coefficient of a resistance, Mayadas and Shatzkes theory.

Підп. до друку 16.05.2001 р.

Формат 60×90/16.

Обл.-вид. арк. 1,05.

Ум.др.арк. 0,98.

Наклад 100 пр.

Замовл.№:

---

Надруковано у "Ризоцентрі" СумДУ.

40007.м.Суми, вул. Римського-Корсакова, 2.